PHONONENPHYSIK: AKUSTIK BEI TERAHERTZ-FREQUENZEN W. Eisenmenger Physikalisches Institut der Universität Stuttgart

1. Einleitung

Mechanische oder akustische Schwingungen und Wellen in Plüssigkeiten und Festkörpern sind wie elektromagnetische Wellen quantisiert und man bezeichnet die entsprechenden Energiequanten als akustische Phononen. Für Existenz und Ausbreitung dieser mechanischen Wellen besteht wegen des atomaren Aufbaus der Materie eine obere Frequenzgrenze, die je nach Substanz im Bereich von einigen 10¹² bis 10¹³Hz, d.h. im Frequenzbereich bis etwa 10 THz liegt.

Die Akustik bei THz-Frequenzen ist daher eine Erweiterung des Ultraschallbereichs zu den höchstmöglichen Frequenzen und dient der Untersuchung von Wellenausbreitung, Absorption und Streuung im Volumen oder an Grenzflächen von Körpern. Streuung und Absorption werden u.a. durch Resonanzübergänge bei Fremdatomen oder Gitterdefekten, z.B. Versetzungen verursacht. Solche Untersuchungen gehören zur akustischen Absorptionsspektroskopie, wobei die Nachweisempfindlichkeit um einige Größenordnungen höher sein kann als die im vergleichbaren Frequenzbereich liegende Ferninfrarotspektroskopie.

Andererseits entstehen höchstfrequente mechanische Schwingungen bei den meisten Energieumsetzungsprozessen z.B. in Festkörpern als Wärme. Transistoren, lichtemittierende Dioden oder supraleitende Tunneldioden sind Beispiele dafür, daß neben den gewünschten Schalt- bzw. Lichtemissionsanteilen auch Energieverluste vorhanden sind. Diese Energieverluste treten in der Regel zunächst als nichtthermische akustische Phononen auf. Anschließende Phonon-Phononund Phonon-Elektron-Wechselwirkung führt zur Thermalisierung.

Wird diese Wechselwirkung unterdrückt, so können die primären Phononen direkt untersucht werden. Eine solche Unterdrückung gelingt, wenn die primären Phononen in dünnen Schichten entstehen, die auf Kristallsubstraten mit geringeren sekundären Phononen-Wechselwirkungen aufgebracht sind. Die Frequenzanalyse dieser "Nichtgleichgewichtsphononen" erlaubt im Sinne einer Emissionsspektroskopie mit akustischen Phononen die wesentlichen "Verlustquellen" als Ursache der Phononenemission zu erfassen. Generell sind in diesem Zusammenhang die primären Elektron-Phonon-Prozesse von Interesse, wobei das Experiment eine Identifizierung der wesentlichen Übergangsprozesse zum Ziel hat.

Bei all diesen Untersuchungen ist es wichtig, daß die Phononenausbreitung nicht durch triviale Einflüsse gestört wird. So sind meist sehr reine und versetzungsarme Kristalle sowie Meßmethoden im Bereich tiefer Temperaturen von etwa 1 K zur Herabsetzung des thermischen Phononenuntergrundes erforderlich. Ausbreitungsuntersuchungen erfolgen in der Regel als Pulsexperimente, wobei die Beobachtung akustischer Laufzeiten die Modenzuordnung der Phononen erlaubt.

2. Phononendetektion

Im Gegensatz zum Ultraschallbereich ist eine kohärente Detektion im Terahertzbereich mit Hilfe des Piezoeffektes infolge der kurzen Wellenlängen von 100 Å nicht mehr möglich. Zur breitbandigen Detektion von Phononenpulsen werden daher Supraleiter-Bolometer /1/ mit Erfolg verwendet. Abstimmbare und frequenzselektive Phononendetektion ist durch Phononenübergänge in optischen Systemen und der damit verbundenen optischen Fluoreszenzänderung /2/ möglich. Eine untere Schwellenergie (Mindestfrequenz) der Phononendetektion ist bei Supraleiter-Schicht-Tunnelkontakten /3/ vorhanden, wobei die Supraleiter-Metallfilme auf beliebige polierte Kristallflächen durch Hochvakuumbedampfung aufgebracht werden können. Der Tunnelkontakt besteht aus zwei Supraleiterschichten, die durch eine isolierende ca. 20 Å dicke Oxidschicht getrennt sind. Phononen mit der Mindestenergie der Supraleiter-Energielücke (Al ÷ 80 GHz, Sn + 280 GHz, Pb + 680 GHz) werden durch Brechen von Cooperpaaren absorbiert. Die dabei entstehenden angeregten Elektronen (Quasiteilchen) können durch den Tunnelprozeß die Oxidbarriere durchdringen und rufen im äußeren Stromkreis einen Signalstrom hervor. Bei "Tunnelkontakten aus Supraleiterfilmen mit unterschiedlicher Energielücke kann über die Schwellenergie hinausgehend weitere Information über das Phononenspektrum /4/ gewonnen werden. Ebenso ist eine Analyse des emittierten Phononenspektrums durch druckabhängige atomare Resonanzabsorption, z.B. bei den Systemen Ge:Sb oder Si:B, möglich.

116

3. Phononenerzeugung

Die experimentell einfachste Technik der Phononenerzeugung für Pulsexperimente ist die Benutzung eines aufgedampften Heizermetallfilms /l/. Das abgestrahlte Phononenspektrum entspricht der Phononengleichgewichtsverteilung im Heizerfilm. Im Substratkristall, der sich auf Badtemperatur befindet, stellt das abgestrahlte Phononenspektrum trotz seiner Breitbandigkeit eine Nichtgleichgewichts-Phononenverteilung dar. Durch Veränderung der Heizerleistung, d.h. der Heizertemperatur, kann die mittlere Phononenfrequenz über einen großen Bereich /5/ abgestimmt werden.

Schmalbandige oder quasi-monochromatische Phononenspektroskopie /3/ /4/ gelingt mit Supraleitertunnelkontakten. Elektronen, die bei Spannungen oberhalb der Energielückenschwelle tunneln können, erhalten eine von der anliegenden Spannung abhängige kinetische Energie. Durch Wechselwirkung mit dem Gitter des Metallfilms, in den die Elektronen eindringen, wird diese Energie in Phononen umgesetzt, wobei die maximale Phononenenergie durch die Batteriespannung gemas huph = eU Batt. -2 bestimmt ist. Hierbei ist h das Plancksche Wirkungsquantum, ω_{ph} die Phononenkreisfrequenz, e = die Elementarladung, U_{Batt} die Batteriespannung, 2 die Supraleiter-Energielücke. Durch Modulation /3/ der Batteriespannung entspricht die Modulation des Detektorsignals der Linienintensität bei $\hbar \omega_{\mathrm{ph}}$ mit der Bandbreite der Batteriespannungsvariation. Für den Fall, daß die Energielücke des Generatortunnelkontaktes sehr klein gegenüber der maximalen Phononenenergie ist, ermöglicht die zweite Harmonische des Modulationssignals des Detektors eine verbesserte Spektralanalyse /3/. Die Analyse des primären Phononenemissionsspektrums supraleitender Tunnelkontakte und die qualitative Bestätigung aller theoretisch erwarteten Prozesse und Übergänge (vergl. /3/ und /4/) ist ein Beispiel dafür, wie durch gezielte Verhinderung (hier Dünnfilmtechnik) weiterer Wechselwirkungsprozesse (Phonon-Phonon, Phonon-Elektron) die Einstellung des thermischen Gleichgewichtes verhindert werden kann.

4. Absorptionsspektroskopie

Hierzu sind bereits eine Vielzahl von Beispielen bekannt (vergl. /3//4/). Als besonders interessant erscheint die Phononenabsorption

von interstitiellem Sauerstoff in Si (vergl. Abb.1). Hier wurden abstimmbare Phononen mit einem Al-I-Al-Tunnelkontakt erzeugt und mit einem Sn-I-Sn-Detektor nachgewiesen. Neben dem bei einer Konzentration von 10^{18} cm⁻³ sehr starken Knickschwingungs-Rotationsübergang des ¹⁶O-Atoms (zwischen zwei benachbarten Si-Atomen) wird auch der entsprechende Übergang des ¹⁸O-Isotops bei einer Konzentration von 10^{14} cm⁻³ beobachtet. Resonanzstrukturen bei höheren Frequenzen bis 1,25 THz deuten auf Nachbarwechselwirkungen zwischen ¹⁶O-Atomen. Die Nachweisempfindlichkeit von 10^{13} cm⁻³ übertrifft vergleichbare Ferninfrarotmessungen um mehrere Größenordnungen.

Die Absorptionsspektroskopie mit akustischen Phononen wurde bereits bei einer Vielzahl von atomaren Resonanzsystemen erfolgreich eingesetzt, vergl. /3/, /4/, /6/, /7/, /8/.

Hinausgehend über die quasi-monochromatische Phononenspektroskopie wurde auch eine monochromatische Phononenspektroskopie /9/, /8/ durch Ausnutzung des AC-Josephson-Effektes möglich. Insgesamt hat die Akustik hier Zugang zu atomphysikalischen Prozessen gefunden.



Abb.1

Phononenresonanzabsorption von interstitiellem ¹⁶O und ¹⁸O in Silizium. Aufgenommen mit Al-I-Al als Generator und Sn-I-Sn als Detektor. Das Signal d^2S/dU^2 entspricht der doppelten Modulationsfrequenz, die im 1 THz-Bereich besser die Absorptionslinie wiedergibt als das Signal dS/dU mit der Modulationsfrequenz. Nach /4/.

5. Phononenausbreitung und quantitative Spektroskopie

Neben qualitativen Spektroskopiedaten ist das schwerer zu erreichende Ziel eine bezüglich aller Phononenmoden quantitative Spektroskopie. Bislang sind nur bei supraleitenden Tunneldioden als Generator und Detektor für Phononen Absolut-Messungen (vergl. /3/, /4/) versucht worden. Der Vergleich mit einfachen theoretischen Modellen /3/,/4/ ergab dabei, daß die jeweils am Detektor nachgewiesene Phononenintensität etwa eine Größenordnung unter dem berechneten Wert lag. Eine ins einzelne gehende Analyse /10/ führte zu dem Ergebnis, daß die Verlustursache in der Grenzfläche zwischen Generator-Substrat und Detektor-Substrat zu suchen ist. Phononenverluste in Grenzflächen können nun besonders direkt in Reflexions- oder Rückstreumessungen untersucht werden.

6. Phononenrückstreumessungen und Phononenfokussierung

Die Phononenrückstreuung an freien Si-Oberflächen ergibt, wie Abb.2 zeigt, ausgeprägte und scharfe Echosignale /12/. Die Phononenpulse wurden mit einem Heizerfilm und mit einem Sn-I-Sn-Tunnel-



Abb.2

Phononenrückstreusignale an einer (O1O) Si-Grenzfläche. Heizerpulssignal detektiert mit einem Sn-I-Sn-Tunneldetektor. Das vierte Signal wird trotz seiner Laufzeitschärfe durch diffuse Streuung, Weg 3 des Bildeinsatzes, verursacht. Nach /12/. detektor nachgewiesen. Die Schärfe der Signale deutet auf spiegelnde Reflexion, allerdings konnte der vierte Puls nur den Laufwegen der diffusen Streuung zugeordnet werden. Weiterhin zeigte eine Metallbedeckung der "reflektierenden" Fläche statt des theoretischen Reflexionsfaktors von l& einen "Reflexionsfaktor" von ca. 50% in etwa gleicher Stärke wie eine Bedeckung durch Stickstoff oder Helium, obwohl in diesem Fall der theoretische Reflexionsfaktor nahe bei 100% liegt. Monte-Carlo-Rechnungen unter Berücksichtigung des Einflusses der Anisotropie der Ausbreitung ballistischer Phononen /12/ bzw. der Phononenfokussierung (vergl. /11/) an der unbedeckten Fläche zeigten nun, daß auch bei diffuser Streuung scharfe Phononenpulsbilder auftreten können /12/. Diese Phononenfokussierung kann im Einklang mit Berechnungen /13/ leicht demonstriert werden (vergl. /11/).

Im Gegensatz zur isotropen Wärmeleitung in kubischen Kristallen The Silizium und Germanium ist die Ausbreitung ballistischer Photonen (Fortfall von Umklapp- und Normalprozessen) durch die Gruppangeschwindigkeit der Phononen bestimmt. Bei starker Anisotropie far Phononengeschwindigkeit und etwa gleicher Besetzung verschiefaner -Zustände in einem endlichen Energiebereich, tritt in bestimmten Richtungen ein stark erhöhter Energiefluß /13/ auf (vergl. Abb.3). Diese ausgeprägt anisotrope Richtungsverteilung kann in



Abb.3

Richtungsverteilung der Phononenintensität in Ge bei Anregung durch einen punktförmigen Heizerfilm getrennt nach den Phononenmoden, L = longitudinale Mode, T_1 , T_2 = schnelle und langsame transversale Moden. Nach /13/.

einem einfachen Experiment unter Ausnutzung des Phononenstrahlungsdruckes auf einen He-Flüssigkeitsfilm nachgewiesen werden /11/. Abb.4 zeigt die experimentelle Anordnung. Bei Temperaturen im Be-



Abb.4

Versuchsanordnung zur Sichtbarmachung der Phononenintensität auf der Oberfläche eines Einkristalls mit Hilfe des Fontänendrucks. Nach /11/.

reich des superfluiden Heliums, d.h. unterhalb des λ Punktes wird die Oberseite des in das flüssige Helium eintauchenden Kristalls mit einem dünnen Heliumfilm überzogen. Phononen, die entsprechend der ausgeprägten Richtungsverteilung an der Oberfläche zu einer lokal höheren Temperatur und dementsprechend zu einem höheren akustischen Strahlungsdruck führen, bewirken eine Aufwölbung des Heliumfilmes (vergl. Abb.5), die direkt sichtbar ist und fotografiert werden kann. Alternative Meßmethoden /7/,/11/,/8/ erlauben eine genauere quantitative Analyse dieser Richtungsverteilungen.



Abb. 5

Bild der Phononenintersitätsverteilung auf der /111/ Oberfläche eines Si-Kristalls mit Hilfe des Fontänendruckes. Nach /11/.

7. Kristall-Politur- und Frequenzeinfluß auf die Phononenrückstreuung

Nachdem die vorher beschriebene Phononenfokussierung leicht spiegelnde Reflexion vortäuscht, ist zur Bestimmung der Anteile in spiegelnder und diffuser Streuung eine sorgfältige Analyse durch Monte-Carlo-Rechnungen und ein anschließender Vergleich mit dem Experiment notwendig. Hierbei sind als wichtige Parameter die Oberflächenbehandlung und die Phononenfrequenz zu erfassen. Während vorangegangene Ergebnisse bei diamantpoliertem Silizium und Phononenfrequenzen von 280 GHz nach dieser Vergleichsmethode überwiegend diffuse Streuung ergaben /12/, zeigten Al_2O_3 Flächen (100) je nach Politur mit kolloidalem SiO₂ oder kubischem kolloidalem Al_2O_3 bei 80 GHz Phononen und bei der SiO₂-Politur weitgehend diffuse Streuung, bei der Al_2O_3 -Politur jedoch überwiegend reine Reflexion /14/. Das entsprechende Experiment mit 280 GHz Phononen und Diamantpolitur ergab ein Verhältnis von 4:3 zwischen spiegelnd und diffus gestreuten Phononen /14/.

Interessanterweise zeigen nun auch Si-Flächen (vergl. Abb.6),die mit kolloidalem SiO₂ poliert wurden, bei 80 GHz nur spiegelnde Reflexion /15/. Eine Bedeckung mit flüssigem Helium ergibt im Einklang mit der theoretischen Erwartung keinen signifikanten Unter-



Abb.6

Phononen-Reflexion an der Oberfläche eines Si-Kristalls bei 80 GHz und kolloidaler SiO₂-Politur. Die Signale bei freier Oberfläche und bei ⁴He-Bedekkung sind direkt übereinander geschrieben. Nach /15/.



Abb.7

Phononen-Rückstreuung an der Oberfläche eines Si-Kristalls bei 80 GHz und Diamant-Politur. Die Signale bei freier Oberfläche und bei ⁴He-Bedeckung sind direkt übereinander geschrieben. Nach /15/. schied in der Rückstreuung /15/. Bei alternativer Diamantpolitur und 80 GHz Meßfrequenz tritt ebenso kein signifikanter Unterschied (vergl. Abb.7) zwischen der Streuung an der unbedeckten und der mit ⁴He bedeckten Oberfläche auf, obwohl hierzu die diffuse Streuung deutlich beiträgt. Demgegenüber treten auch bei der mit SiO₂ polierten Si-Fläche bei. Frequenzen von 280 GHz zusätzliche diffuse Streuanteile auf, die jedoch bei ⁴He-Bedeckung verschwinden.

Dieses Ergebnis steht im Einklang mit dem Modell /12/, daß diffuse Oberflächenstreuung sowohl durch geometrische Rauhigkeit (kein Bedeckungseinfluß durch ⁴He) als auch durch atomare bzw. molekulare Oberflächenzustände oder Resonanzen (starker Bedeckungseinfluß durch ⁴He) hervorgerufen wird. Die darüber hinaus vorhandene starke Frequenzabhängigkeit wurde auch bei der Phononentransmission /16/ von Supraleiter-Tunnelkontakten in flüssiges ⁴He beobachtet. Hier tritt oberhalb der Frequenz von 80 GHz ein mit einfachen akustischen Modellen nicht erklärbarer hoher Anstieg der Phononentransmission in das He-Bad auf. Diese als Kapitza-Anomalie bezeichnete Erscheinung hat möglicherweise ähnliche Ursachen, d.h. Grenzflächenzustände und Defekte wie die hohe Phononenrückstreuung von ca. 50% an der Kristall-Metall-Grenzfläche, obwohl die akustischen Daten weitgehend Anpassung erwarten lassen.

Da die beschriebenen akustischen Eigenschaften realer Grenzflächen recht verwickelt, aber doch auch physikalisch sehr interessant erscheinen, entsteht die Frage inwieweit akustisch ideale Grenzflächen auch im THz-Frequenzbereich hergestellt werden können. Wege hierzu sind das Spalten unter UHV-Bedingungen /17/, die Herstellung idealer Oberflächen durch Laser-Annealing (vergl./8/) oder auch durch Aufwachsen von Schichten mit der Molekularstrahlepitaxie /18/. Sicher ist es auch interessant nach alternativen und einfachen Verfahren der Grenzflächenpräparation zu suchen, wie z.B. bestimmten Poliertechniken /14/, /15/.

8. Zukünftige Entwicklungen

Ziel der Phononenphysik bei THz-Frequenzen ist es, den gesamten Bereich der möglichen Schwingungen bis ca. 10 THz für phononenspektroskopische Untersuchungen zugänglich zu machen. Ansätze in dieser Richtung bestehen in mehrfacher Beziehung. Insbesondere wird von Seiten der Halbleitertechnologie und Mikroelektronik zunehmend die Bedeutung der Phononenphysik erkannt. Zum Übergang von Photonen in hochenergetische Phononen in Halbleitersystemen wie GaAs existieren bereits Untersuchungen /19/.

Allerdings besteht bei diesen Untersuchungen die Notwendigkeit, hochenergetische Phononen von den fast immer gleichzeitig auftretenden thermischen Phononen abzutrennen. Aus diesem Grunde kommt neuen Detektoren mit möglichst hoher Energieschwelle eine besondere Bedeutung zu. Supraleiter-Detektoren mit wesentlich höheren Werten der Energielücke als bei Pb wurden bisher nicht bekannt. Stattdessen ist bei den dotierten Halbleitern Si:B (P,As,In) in Analogie zur Photoleitung eine Phonoleitung /20/,/21/ gefunden worden. Hierbei wird die Phononenanregung von an D⁻ oder A⁺-Zentren gebundenen Ladungsträgern ausgenutzt. Die Anordnung ist in Abb.8 schematisch dargestellt. Für das System Si:In zeigt Abb.9



Abb.8

"Phonoleitung": D und A⁺-Zentren entstehen durch optisch angeregte Elektronen bzw. Löcher, die bei tiefen Temperaturen an neutralen Donatoren bzw. Akzeptoren eingefangen werden. Nach /20,21/.



Abb.9

Das Phonoleitungssignal entsteht durch Phononen, deren Energie ausreicht, um die gebundenen Überschußladungsträger wieder von den D⁻/A⁺-Zentren abzulösen. Signaleinsatz bei 6,2 meV entsprechend 1,54 THz in Si:In. Abstimmbarer Generator Al-I-Al. Nach /20,21/. den Signalanstieg, sobald die von einer Al-Tunneldiode abgestrahlten Phononen die Bindungsenergie des Systems, d.h. den Schwellwert von 6,2 meV entsprechend 1,5 THz überschreiten. Über die Auffindung eines neuartigen und empfindlichen Phononendetektors hinausgehend, zeigt dieses Resultat die Möglichkeit der Erzeugung von quasi-monochromatischen Nichtgleichgewichtsphononen in dünnen Al-Filmen bis zu dieser Frequenz. Grundsätzlich können in Al-Filmen Phononen bis zu 10 THz (longitudinal) und 5 THz (transversal) entstehen.

Zukünftige Fragen betreffen weiter die quantitative Beschreibung der Phononenemission, -absorption und -streuung für alle Moden und deren experimentelle Kontrolle. Bei der Lösung technologischer Fragen im Bereich der Mikroelektronik und der Energieverluste in elektronischen Bauelementen wird die Phononenphysik in zunehmendem Maße auch anwendungsbezogene Beiträge liefern können.

Diesem Bericht liegen unter anderem die Ergebnisse der Untersuchungen von S. Burger, W. Burger, W. Forkel, O. Koblinger, K. Laßmann, D. Marx, H.J. Trumpp und M. Welte zugrunde, denen ich an dieser Stelle besonders danken möchte. Ein Teil der Arbeiten wurde durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft gefördert.

Literatur

- /1/ R.J. von Gutfeld in Physical Acoustics (W.P. Mason Ed) Vol 5, p. 233 Academic Press, New York 1968
- /2/ K.F. Renk, Festkörperprobleme 12, 1972. S. 107
- /3/ W. Eisenmenger in Physical Acoustics (W.P. Mason and R.N. Thurston Ed) Vol 12, p. 79, Academic Press, New York 1976
- /4/ W. Eisenmenger in Proceedings of Nato Advanced Study Institute on Nonequilibrium Superconductivity Phonons and Kapitza Boundaries, p. 73
 - (K.E. Gray Ed) Plenum Press, New York 1981
- /5/ O. Weis, Jour. de Physique, Paris C4-1972, p.50
- /6/ Phonon Scattering in Solids (L.J. Challis et al. Eds)
 Plenum Press, New York 1976

- /7/ Phonon Scattering in Condensed Matter (H.J. Maris Ed)
 Plenum Press, New York 1980
- /8/ Phonon Scattering in Condensed Matter (W. Eisenmenger et al. Eds), Springer Ser. Solid State Sciences 51, Heidelberg 1984
- /9/ P. Berberich and H. Kinder in/8/ Seite 18. ff
- /10/ H.J. Trumpp and W. Eisenmenger, Z. Physik B 28, 159, 1977
- /11/ W. Eisenmenger, Jour. de Physique C6-1981, p 201
- /12/ D. Marx et al., Jour. de Physique C6-1978, p 1015
 D. Marx and W. Eisenmenger, Z. Phys. B 48, 277, 1982
- /13/ F. Rösch and O. Weis, Z. Phys. B 25, 115, 1976
- /14/ S. Burger et al., Proc. 17 Internat. Conf. on Low Temp. Phys. CR1, 659, North-Holland, Elsevier 1984
- /15/ S. Burger et al, 5th EPS Cond. Matter Conf. Berlin 1985
 PMO-09-148
- /16/ O.Koblinger at al., Phys. Rev. Lett. 51, 284, 1983
- /17/ J. Weber et al. Phys.Rev.Lett. 40, 1469, 1978
- /18/ V. Narayanamurti et al, Phys. Rev. Lett. 43, 2012, 1979
- /19/ V. Narayanamurti in /4/, p. 111
- /20/ W. Burger and K. Laßmann, Phys.Rev.Lett. 53, 2035, 1984
- /21/ W. Burger and K. Laßmann, 5th EPS Cond.Matter Conf.Berlin 1985
 PMO-09-149